

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
3. Februar 2005 (03.02.2005)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2005/011040 A2**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **H01M 8/24**

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE2004/001639

(22) Internationales Anmeldedatum:  
23. Juli 2004 (23.07.2004)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
103 34 131.5 25. Juli 2003 (25.07.2003) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme  
von US): **WEBASTO AG** [DE/DE]; Kraillinger Strasse 5,  
82131 Stockdorf (DE).

(72) Erfinder; und

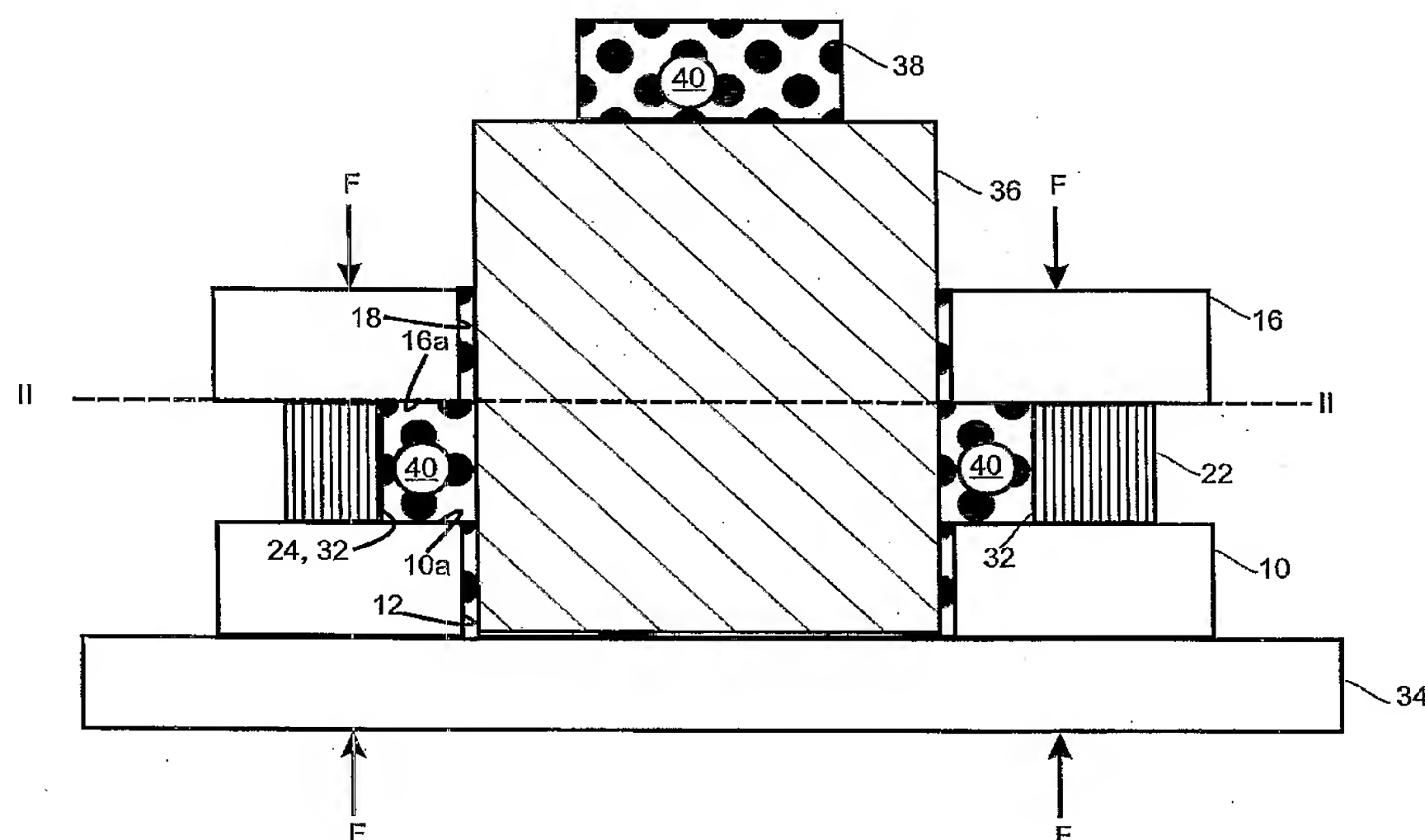
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **STELTER, Michael**  
[DE/DE]; Am Eichenhof 1, 09247 Chemnitz (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für  
jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL,  
AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,  
CN, CO, CR, CU, CZ, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI,  
GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE,  
KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD,  
MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG,  
PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM,  
TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM,  
ZW.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING A FUEL CELL STACK

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG EINES BRENNSTOFFZELLENSTAPELS



(57) Abstract: The invention relates to a method for producing a fuel cell or a fuel cell stack, comprising the following steps: a) providing a first repeating unit (10) with a first sealing surface (10a) and at least one second repeating unit (16) with a second sealing surface (16a) and b) forming at least one sealing section (42) between the first sealing surface (10a) and the second sealing surface (16a). According to said invention, the step b) comprises: b1) arranging a template (22) between the first sealing surface (10a) and the second sealing surface (16a), whereby said template (22) has at least one edge area (32) which is arranged adjacent to the sealing section to be formed (42), and b2) introducing a sealing compound (40) into an area which is defined by the first sealing surface (10a), the second sealing surface (16a) and the edge area (32) of the template (22).

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzelle beziehungsweise eines Brennstoffzellenstapels, mit den folgenden Schritten: a) Vorsehen einer ersten Wiederholeinheit (10) mit einer ersten Dichtfläche (10a) und zumindest einer

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 2005/011040 A2



(84) **Bestimmungsstaaten** (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Erklärungen gemäß Regel 4.17:**

— hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für die folgenden Bestimmungsstaaten AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW, ARIPO Patent (BW, GH,

GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG)

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, die Priorität einer früheren Anmeldung zu beanspruchen (Regel 4.17 Ziffer iii) für alle Bestimmungsstaaten
- Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv) nur für US

**Veröffentlicht:**

- ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

zweiten Wiederholeinheit (16) mit einer zweiten Dichtfläche (16a); und b) Ausbilden von zumindest einem Dichtungsabschnitt (42) zwischen der ersten Dichtfläche (10a) und der zweiten Dichtfläche (16a). Erfindungsgemäss ist vorgesehen, dass der Schritt b) umfasst: b1) Anordnen einer Schablone (22) zwischen der ersten Dichtfläche (10a) und der zweiten Dichtfläche (16a), wobei die Schablone (22) zumindest einen Randbereich (32) aufweist, der benachbart zu dem auszubildenden Dichtungsabschnitt (42) angeordnet wird; und b2) Einbringen einer Dichtungsmasse (40) in einen Bereich, der durch die erste Dichtfläche (10a), die zweite Dichtfläche (16a) und den Randbereich (32) der Schablone (22) begrenzt wird.

5

### **Verfahren zur Herstellung eines Brennstoffzellenstapels**

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzelle beziehungsweise eines Brennstoffzellenstapels, mit den folgenden Schritten: a) Vor-  
10 sehen einer ersten Wiederholeinheit mit einer ersten Dichtfläche und zumindest einer zweiten Wiederholeinheit mit einer zweiten Dichtfläche; und b) Ausbilden von zumindest einem Dichtungsabschnitt zwischen der ersten Dichtfläche und der zweiten Dichtfläche.

15 Beispielsweise SOFC-Brennstoffzellenstapel (SOFC = "Solid Oxide Fuel Cell") umfassen eine Vielzahl von sogenannten Wiederholeinheiten, zwischen denen jeweils Dichtungen angeordnet sind, die in vielen Fällen den Abstand der Wiederholeinheiten festlegen und beispielsweise sich in Stapelrichtung des Brennstoffzellenstapels erstreckende Durchbrüche abdichten. Weiterhin sind in der  
20 Regel eine obere sowie eine untere Endplatte sowie Stromabnehmerplatten vorgesehen. Es sind sowohl Brennstoffzellenstapel bekannt, bei denen die einzelnen Lagen starr verklebt sind (beispielsweise durch eine Glaspaste), als auch Brennstoffzellenstapel, die über lösbare, kompressible Dichtungen oder über Compound-Dichtungen verfügen.

25

Ein Problem bei der Herstellung von Brennstoffzellen beziehungsweise von Brennstoffzellenstapeln besteht darin, dass die Einzeldichtungen extrem aufwendig herzustellen sind, wobei in vielen Fällen beispielsweise beim Stanzen viel Verschnitt anfällt. Weiterhin ist derzeit nur eine sehr zeitaufwendige serielle  
30 Fertigung möglich. Zu diesem Zweck ist es beispielsweise bekannt, eine die Dichtungsmasse bildende Glaspaste seriell auf jede einzelne Wiederholeinheit aufzurakeln oder mit Hilfe eines Dispensers in Raupen zu legen. Die serielle Fertigung ist weiterhin fehleranfällig. Beispielsweise ergibt sich die Ausfallrate eines Brennstoffzellenstapels zu:

- 2 -

Ausfallrate =  $1 - (1 - p)^n$ ,

5 wobei n der Anzahl der Dichtungen und p der Ausfallwahrscheinlichkeit einer Einzeldichtung entspricht.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, die gattungsgemäßen Verfahren derart weiterzubilden, dass die Fehleranfälligkeit gesenkt und eine parallele Fertigung möglich wird.

10

Diese Aufgabe wird durch die Merkmale des Anspruchs 1 gelöst.

Vorteilhafte Ausgestaltungen und Weiterbildungen der Erfindung ergeben sich aus den abhängigen Ansprüchen.

15

Die Erfindung baut auf dem gattungsgemäßen Stand der Technik dadurch auf, dass der Schritt b) umfasst: b1) Anordnen einer Schablone zwischen der ersten Dichtfläche und der zweiten Dichtfläche, wobei die Schablone zumindest einen Randbereich aufweist, der benachbart zu dem auszubildenden Dichtungsabschnitt angeordnet wird; und b2) Einbringen einer Dichtungsmasse in einen Bereich, der durch die erste Dichtfläche, die zweite Dichtfläche und den Randbereich der Schablone begrenzt wird. Diese Lösung ermöglicht eine schnelle und prozesssichere Montage, bei der mehrere Dichtungen gleichzeitig ausgerichtet werden können. Weiterhin ist der Materialverlust im Vergleich zu bekannten Verfahren gering, ebenso wie die Fehleranfälligkeit. Die Abmessungen des zumindest einen auszubildenden Dichtungsabschnitts können durch die Wahl der Abmessungen der Schablone in einfacher Weise beeinflusst werden.

20  
25

Die Vorteile des erfindungsgemäßen Verfahrens treten besonders deutlich hervor, wenn vorgesehen ist, dass zum Aufstapeln eines Brennstoffzellenstapels eine Vielzahl von Wiederholeinheiten übereinander angeordnet wird, wobei zwi-

30

- 3 -

schen jeweils zwei benachbarten Wiederholeinheiten jeweils zumindest eine Schablone vorgesehen wird. In diesem Fall kann eine Vielzahl von zwischen den einzelnen Wiederholeinheiten vorgesehenen Dichtungsabschnitten parallel hergestellt werden.

5

Weiterhin wird bevorzugt, dass die Schablone zumindest teilweise aus einem organischen Fasermaterial, einem Kohlefasermaterial oder einem entsprechenden Verbundmaterial gebildet ist. Bei dem jeweiligen Material kann es sich beispielsweise um Filz, Vlies, Gewirk oder Gewebe handeln.

10

Weiterhin kann in vorteilhafter Weise vorgesehen sein, dass die Schablone während und/oder nach der Ausbildung des zumindest einen Dichtungsabschnitts ganz oder teilweise entfernt und/oder ganz oder teilweise in ihren Materialeigenschaften verändert wird. Beispielsweise kann die Schablone aus einem nicht-temperaturbeständigen (beispielsweise für Temperaturen über 800 °C), brennbaren, ebenen Material bestehen. In diesem Fall kann die Schablone nach der Ausbildung des zumindest einen Dichtungsabschnittes durch Verbrennen ganz oder vollständig entfernt werden. Alternativ kann die Schablone aus einem Material bestehen, welches statt der Eigenschaft der Brennbarkeit die Eigenschaft besitzt, unter Temperatureinwirkung seine mechanische Stabilität zu verlieren, das heißt unter Krafteinwirkung zu kollabieren. Weiterhin kann das Material (beziehungsweise dessen Abbauprodukte) elektrisch isolierend sein. Zu diesem Zweck kann das Material beispielsweise durch einen organischen oder keramischen Faserverbund- oder Schaumwerkstoff gebildet sein, bei dem unter Temperatureinwirkung zumindest eine strukturbildende Komponente verdampft, verbrennt oder schmilzt. Wie bereits erwähnt, kommt auch ein Verbundmaterial in Betracht, das eine Kombination der erwähnten Materialien darstellt.

25



- 4 -

Bei bevorzugten Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens ist vorgesehen, dass die Dichtmasse dispergierte Bestandteile für ein Glaslot enthält.

5 Weiterhin wird bevorzugt, dass die Dichtmasse zur Ausbildung des zumindest einen Dichtungsabschnitts zumindest teilweise einem Aushärte- und/oder Gelierprozess unterzogen wird. Zum Aushärten oder Gelieren enthält die Dichtmasse vorzugsweise eine Härterkomponente. Dabei kann die Härterkomponente der Dichtmasse in vorteilhafter Weise erst kurz vor dem Injizieren beziehungsweise Einbringen in den entsprechenden Bereich beigemischt werden.  
10 Der Härter- oder Gelbildner kann beispielsweise durch Luftzutritt, Temperatur oder einen chemischen Aktivator aktiviert werden, der auf die Schablone und/oder zumindest eine Dichtfläche appliziert wurde.

15 Ohne darauf beschränkt zu sein, wird bevorzugt, dass der zumindest eine Dichtungsabschnitt benachbart zu einer ersten Ausnehmung in der ersten Wiederholeinheit ausgebildet wird. Die Ausnehmung kann insbesondere dazu vorgesehen sein, einen sich durch den Brennstoffzellenstapel erstreckenden Gaskanal mit zu bilden.

20

In ähnlicher Weise kann vorgesehen sein, dass der zumindest eine Dichtungsabschnitt benachbart zu einer ersten Ausnehmung in der zweiten Wiederholeinheit ausgebildet wird. Ohne darauf beschränkt zu sein, lässt sich das erfindungsgemäße Verfahren besonders vorteilhaft anwenden, wenn eine erste Ausnehmung in der ersten Wiederholeinheit mit der zweiten Ausnehmung in der zweiten Wiederholeinheit in Stapelrichtung miteinander ausgerichtet sind.  
25

Insbesondere in diesem Zusammenhang wird weiterhin bevorzugt, dass die Schablone eine erste Ausnehmung aufweist, deren Abmessungen größer als die Abmessungen der ersten Ausnehmung in der ersten Wiederholeinheit und/oder größer als die Abmessungen der ersten Ausnehmung in der zweiten  
30

Wiederholeinheit sind. In diesem Fall legt das Übermaß der ersten Ausnehmung in der Schablone die Breite des auszubildenden Dichtungsabschnitts fest, während die Höhe der Schablone die Höhe des auszubildenden Dichtungsabschnitts festlegt.

5

Bei besonders bevorzugten Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens ist vorgesehen, dass das Einbringen der Dichtungsmasse gemäß dem Schritt 2b) zumindest teilweise über die erste Ausnehmung in der ersten Wiederholeinheit und/oder über die erste Ausnehmung in der zweiten Wiederholeinheit und/oder über die erste Ausnehmung in der Schablone erfolgt. Zum Einbringen der Dichtungsmasse wird vorzugsweise eine Zuführeinrichtung verwendet, die beispielsweise einen Schlauch oder ein Rohr umfassen kann. Vorzugsweise ist ein Flansch oder eine sonstige Kupplungseinrichtung vorgesehen, mit der die Zuführeinrichtung unter Abdichtung mit einer der ersten Ausnehmungen verbunden werden kann.

15

Im vorstehend erläuterten Zusammenhang wird es weiterhin als vorteilhaft erachtet, wenn vorgesehen ist, dass sich beim Einbringen der Dichtungsmasse gemäß dem Schritt 2b) ein Dorn zumindest teilweise durch die erste Ausnehmung in der ersten Wiederholeinheit und/oder die erste Ausnehmung in der zweiten Wiederholeinheit und/oder die erste Ausnehmung in der Schablone erstreckt. Der Dorn hat vorzugsweise nur geringfügig kleinere Außenabmessungen als die Innenabmessungen der ersten Durchbrüche. Die Viskosität der Dichtmasse ist dabei vorzugsweise so gewählt, dass nur wenig oder keine Dichtmasse beim Entfernen des Dorns in den dann freiwerdenden Durchbruch läuft.

20

25

Bei bestimmten Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens ist vorgesehen, dass die erste Wiederholeinheit eine zweite Ausnehmung und/oder die zweite Wiederholeinheit eine zweite Ausnehmung und/oder die Schablone

30

- 6 -

eine zweite Ausnehmung aufweist. Dabei wird bevorzugt, dass die vorhandenen zweiten Ausnehmungen in Stapelrichtung miteinander ausgerichtet sind.

In diesem Zusammenhang wird weiterhin bevorzugt, dass die erste Ausnehmung der Schablone über einen ersten Kanal mit der zweiten Ausnehmung der Schablone verbunden ist. In diesem Fall können die miteinander ausgerichteten zweiten Ausnehmungen einen Einfüllkanal für die Dichtmasse bilden, wobei die Dichtmasse über den ersten Kanal von der Einfüllöffnung zu den ersten Ausnehmungen gelangt, in denen vorzugsweise der erwähnte Dorn angeordnet ist. Dabei wird es als vorteilhaft erachtet, wenn der Einfüllkanal eine Querschnittsfläche aufweist, die relativ groß im Vergleich zur Querschnittsfläche des auszubildenden Dichtungsabschnitts ist. Dadurch ist der hydrodynamische Druckverlust im Einfüllkanal sehr viel kleiner als im Dichtkanal, wenn ein Fluid (beziehungsweise die Dichtungsmasse) durch die beiden Kanäle strömt.

Weiterhin kann vorgesehen sein, dass das Einbringen der Dichtungsmasse gemäß dem Schritt 2b) zumindest teilweise über die zweite Ausnehmung in der ersten Wiederholeinheit und/oder über die zweite Ausnehmung in der zweiten Wiederholeinheit und/oder über die zweite Ausnehmung in der Schablone erfolgt.

Weiterhin kann vorgesehen sein, dass nach der Durchführung des Schrittes 2b) in der zweiten Ausnehmung in der ersten Wiederholeinheit und/oder in der zweiten Ausnehmung in der zweiten Wiederholeinheit und/oder in der zweiten Ausnehmung in der Schablone vorhandene Dichtmasse zumindest teilweise wieder entfernt wird, insbesondere mit Hilfe eines zweiten Dorns. Alternativ kann die Dichtungsmasse in dem durch die zweiten Ausnehmungen gebildeten Kanal verbleiben und dort aushärten um die Stabilität des Gesamtaufbaus zu erhöhen.

30



- 7 -

Für alle Ausführungsformen des erfindungsgemäßen Verfahrens wird bevorzugt, dass die erste Wiederholeinheit und die zweite Wiederholeinheit während der Durchführung des Schritts b) zumindest zeitweise komprimiert werden, vorzugsweise durch zumindest eine geregelte Kraftkomponente. Dadurch wird  
5 beim Einfüllen der Dichtungsmasse vermieden, dass die Wiederholeinheiten durch die Dichtungsmasse auseinander bewegt werden. In späteren Verfahrensstufen kann die Kompression dazu beitragen, ein Kollabieren der Schablone(n) hervorzurufen.

10 Jeder mit dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellte Brennstoffzellenstapel fällt in den Schutzbereich der vorliegenden Erfindung.

Dies gilt insbesondere für einen Brennstoffzellenstapel, der dadurch gekennzeichnet ist, dass zumindest zwei in Stapelrichtung des Brennstoffzellenstapels  
15 zumindest im Wesentlichen miteinander ausgerichtete Dichtungsabschnitte durch Dichtungsmasse verbunden sind. Durch Dichtungsmasse verbundene übereinander zwischen mehreren Wiederholeinheiten angeordnete Dichtungsabschnitte stellen ein deutliches Indiz dar, dass das erfindungsgemäße Verfahren angewendet wurde.

20 Wesentlich für die vorliegende Erfindung ist die Erkenntnis, dass es durch den Einsatz von zwischen jeweils zwei Wiederholeinheiten angeordneten Schablonen möglich ist, eine Vielzahl von übereinander vorzusehenden Dichtungen gleichzeitig auszubilden.

25 Bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung werden nachfolgend anhand der Zeichnungen beispielhaft erläutert.

Es zeigen:

30

- Figur 1      Draufsichten und Querschnittsansichten entlang der Schnittlinie I-I von einer ersten und einer zweiten Wiederholeinheit sowie von einer Schablone;
- 5      Figur 2      die Schablone von Figur 1 angeordnet auf der ersten Wiederholeinheit von Figur 1, in einer Draufsicht und einer Querschnittsansicht entlang der Schnittlinie I-I;
- 10      Figur 3      die zweite Wiederholeinheit von Figur 1 angeordnet auf der Anordnung von Figur 2, in einer Draufsicht und einer Querschnittsansicht entlang der Schnittlinie I-I;
- 15      Figur 4      eine Querschnittsansicht entsprechend der Schnittlinie I-I der Figur 3, die das Einbringen der Dichtmasse veranschaulicht;
- 20      Figur 5      eine Draufsicht auf die Anordnung von Figur 4 entlang der Schnittlinie II-II; und
- 20      Figur 6      eine der Darstellung von Figur 5 entsprechende Draufsicht eines fertiggestellten Dichtungsabschnitts.

Figur 1 zeigt Draufsichten und Querschnittsansichten entlang der Schnittlinie I-I von einer ersten 10 und einer zweiten Wiederholeinheit 16 sowie von einer Schablone 22. Gemäß der Darstellung von Figur 1 weist die erste Wiederholeinheit 10 eine erste Dichtfläche 10a sowie einen ersten Durchbruch 12 und einen zweiten Durchbruch 14 auf. Die zweite Wiederholeinheit 16 weist eine zweite Dichtfläche 16a sowie eine erste Ausnehmung 18 und eine zweite Ausnehmung 20 auf.

30      Im dargestellten Fall ist der Aufbau der ersten Wiederholeinheit 10 und der Aufbau der zweiten Wiederholeinheit 16 identisch, obwohl die Erfindung nicht auf

derartige Ausführungsformen beschränkt ist, da auch Anwendungsfälle in Betracht kommen, bei denen unterschiedlich angeordnete Dichtungen zwischen unterschiedlichen Wiederholeinheiten ausgebildet werden.

- 5 Zwischen der ersten Wiederholeinheit 10 und der zweiten Wiederholeinheit 16 ist eine Schablone 22 dargestellt. Die Schablone 22 weist eine erste Ausnehmung 24 und eine zweite Ausnehmung 26 auf. Der Umfang der ersten Ausnehmung 24 in der Schablone 22 definiert im vorliegenden Fall einen Randbereich 32, der dazu vorgesehen ist, benachbart zu dem auszubildenden Dichtungsabschnitt angeordnet zu werden. Die erste Ausnehmung 24 und die zweite Ausnehmung 26 der Schablone 22 sind durch einen ersten Kanal 28 miteinander verbunden. Weiterhin steht der Außenumfang der Schablone 22 über einen zweiten Kanal 30 mit der ersten Ausnehmung 24 in Verbindung.
- 10
- 15 Figur 2 zeigt die Schablone 22 von Figur 1 angeordnet auf der ersten Wiederholeinheit 10 von Figur 1, in einer Draufsicht und einer Querschnittsansicht entlang der Schnittlinie I-I. Der Darstellung von Figur 2 ist zu entnehmen, dass die Abmessungen der ersten Ausnehmung 24 in der Schablone 22 etwas größer als die Abmessungen der ersten Ausnehmung 12 in der ersten Wiederholeinheit 10 gewählt sind. Das Übermaß der ersten Ausnehmung 24 in der Schablone 22 definiert dabei die Breite des auszubildenden Dichtungsabschnitts der im vorliegenden Fall im Wesentlichen kreisringförmig um die erste Ausnehmung 12 der ersten Wiederholeinheit 10 herum ausgebildet werden soll.
- 20
- 25 Figur 3 zeigt die zweite Wiederholeinheit 16 von Figur 1 angeordnet auf der Anordnung von Figur 2, in einer Draufsicht und einer Querschnittsansicht entlang der Schnittlinie I-I. Dabei ist die Schablone 22 zwischen der ersten Wiederholeinheit 10 und der zweiten Wiederholeinheit 16 derart angeordnet, dass die ersten Ausnehmungen 12, 18, 24 und die zweiten Ausnehmungen 14, 20, 26 in
- 30 Stapelrichtung jeweils miteinander ausgerichtet sind, zumindest im Wesentlichen.

Figur 4 zeigt eine Querschnittsansicht entsprechend der Schnittlinie I-I der Figur 3, die das Einbringen der Dichtmasse 40 veranschaulicht und Figur 5 zeigt eine Draufsicht auf die Anordnung von Figur 4, entlang der Schnittlinie II-II.

5

Der Übersichtlichkeit halber sind in Figur 4 nur zwei Wiederholeinheiten 10, 16 mit einer dazwischen angeordneten Schablone 22 dargestellt. Der Fachmann erkennt jedoch problemlos, dass das erfindungsgemäße Verfahren besonders dann Vorteile mit sich bringt, wenn ein Brennstoffzellenstapel mit einer Vielzahl von Wiederholeinheiten und jeweils zwischen diesen angeordneten Schablonen aufgestapelt ist.

10

Miteinander ausgerichtete Ausnehmungen in den einzelnen Wiederholeinheiten können dabei einen oder mehrere sich im Wesentlichen parallel zur Stapelachse durch den Brennstoffzellenstapel ziehende Kanäle bilden, insbesondere Gaszufuhrkanäle. In diesem Fall müssen die zwischen den einzelnen Wiederholeinheiten entstehenden Dichtspalten abgedichtet werden, damit beim Betrieb der Brennstoffzelle kein Gas nach außen tritt. Die erfindungsgemäß ausgebildeten Dichtungen zwischen den Wiederholeinheiten sind in der Regel elektrisch

20 isolierend auszubilden, damit die Wiederholeinheiten nicht elektrisch kurzgeschlossen werden. Weiterhin ist es in vielen Fällen erforderlich, dass die Dichtungen auch bei hohen Temperaturen und vorzugsweise auch bei mechanischen Vibrationen fluiddicht sind, weshalb als Dichtungsmaterial insbesondere ein Glaslot in Betracht kommt.

20

25

Weiterhin ist in Figur 4 lediglich eine untere Endplatte 34 dargestellt. Dem Fachmann ist jedoch klar, dass der Brennstoffzellenstapel in der Regel auch eine nichtdargestellte obere Endplatte aufweist. Im dargestellten Fall weist die Endplatte 34 keinen mit den ersten Durchbrüchen 12, 18, 24 ausgerichteten

30 Durchbruch auf und dient daher als ein permanentes Sperrelement, das auch nach dem Einbringen der Dichtungsmasse 40 Bestandteil der Anordnung bleibt.

- 11 -

Alternativ ist der Einsatz von zumindest einem temporären Sperrelement denkbar, das nach dem Einbringen der Dichtungsmasse entfernt wird. In ähnlicher Weise sind sowohl permanente als auch temporäre Spanneinrichtungen zur mechanischen Verspannung des Brennstoffzellenstapels möglich.

5

Obwohl, wie erwähnt, mit dem erfindungsgemäßen Verfahren vorzugsweise eine Vielzahl von Dichtungsabschnitten gleichzeitig hergestellt wird, wird nachfolgend die Herstellung von nur einem die ersten Ausnehmungen 12, 18 in den Wiederholeinheiten 10, 16 abdichtenden Dichtungsabschnitt 42 beispielhaft erläutert.

10

Zur Herstellung des Dichtungsabschnitts werden auf einer Endplatte 34 die erste Wiederholeinheit 10, die Schablone 22 sowie die zweite Wiederholeinheit 16 derart aufgestapelt, dass die jeweiligen Ausnehmungen 12, 18, 24, beziehungsweise 14, 20, 26 miteinander ausgerichtet sind. Die zweiten Ausnehmungen 14, 20, 26 bilden dabei eine Zuführ- beziehungsweise Einfüllöffnung für die Dichtungsmasse 40. Mit dieser Einfüllöffnung ist eine lediglich in Figur 4 schematisch angedeutete Zuführeinrichtung 38 unter Abdichtung verbunden, so dass in die zweiten Ausnehmungen 14, 20, 26 eingebrachte Dichtungsmasse 40 über den Kanal 28 der Schablone 22 in die ersten Ausnehmungen 12, 18 und 24 gelangt. Die Dichtungsmasse wird dabei vorzugsweise unter hohem Druck eingebracht. Entsprechend des hydrodynamischen Druckverlusts wird in der Regel zuerst der durch die zweiten Ausnehmungen 14, 20, 26 gebildete Einfüllkanal vollständig gefüllt. Danach verteilt sich die Dichtungsmasse 40 in den Dichtkanälen. Dabei kann die verdrängte Luft die Kanäle beispielsweise durch den zweiten Kanal 30 der Schablone 22 oder durch die Schablone 22 verlassen, falls diese eine poröse Struktur aufweist.

15

20

25

30

Während des Einbringens der Dichtungsmasse 40 wird die gesamte Anordnung durch eine extern aufgebrachte, vorzugsweise geregelte Kraft F komprimiert. Der zweite Kanal 30 der Schablone 22 ermöglicht es, dass eventuell zuviel ein-



- 12 -

gebrachte Dichtungsmasse 40 wieder austreten kann. In den miteinander ausgerichteten ersten Ausnehmungen 12, 18 und 24 ist ein Dorn 36 angeordnet, dessen Außenabmessungen etwas kleiner als die Innenabmessungen der ersten Ausnehmungen 12, 18 sind. Der Dorn 36 dient insbesondere dazu, das Querschnittsverhältnis der durch die zweiten Ausnehmungen gebildeten Einfüllöffnung und der auszubildenden Dichtung geeignet festzulegen, um hydrodynamisch günstige Eigenschaften zu erzielen.

Am Ende des Befüllungsvorgangs sind alle Dichtkanäle mit Dichtungsmasse 40 gefüllt. Ein weiteres Einpressen von Dichtungsmasse 40 führt dazu, dass Dichtmasse 40 in den zweiten Kanal 30 oder in die Porenstruktur der Schablone 22 eindringt. Dadurch steigt der Druck im Dichtungskanal und damit im Einfüllkanal rapide an. Dieser Druckanstieg kann in vorteilhafter Weise detektiert werden, um den Einfüllvorgang zu beenden.

Grundsätzlich gilt, dass das Einbringen der Dichtmasse 40 durch einen Unterdruck (Vakuum) unterstützt werden kann, der an den Außenseiten der Schablone 22 relativ zu den Innenseiten anliegt. Da durch den zweiten Kanal 30 bzw. die poröse Ausgestaltung der Schablone 22 ein ständiger Druckausgleich eintritt, muss der Unterdruck ggf. durch ständiges Nachpumpen in einer Vorrichtung aufrechterhalten werden. Der Unterdruck sorgt dafür, dass die Dichtmasse schneller in die Aussparung der Schablone 22 gesaugt wird und dass die Bildung von Lufteinschlüssen / Luftblasen vermieden wird.

Sobald die Dichtungsmasse 40 in ihrem Spalt fixiert ist, kann der Dorn 36 entfernt werden, ohne dass wesentliche Mengen der Dichtungsmasse 40 in die ersten Ausnehmungen 12, 18 gelangen. Alternativ kann jedoch ebenfalls vorgesehen sein, dass der Dorn 36 beispielsweise durch einen Zuganker gebildet ist, der in dem Brennstoffzellenstapel belassen wird, um die Verspannung des fertigen Produkts aufrechtzuerhalten. Nachdem die Zuführeinrichtung 38 abgekoppelt ist, kann die gesamte Anordnung beispielsweise in einen Ofen eingebracht

- 13 -

werden, gegebenenfalls unter Beibehaltung der Kompression durch die Kraft F, um die Dichtungsmasse 40 auszuhärten.

In diesem Fall gibt die Dichtungsmasse 40 durch die Temperaturerhöhung zunächst ihre Löse- oder Verdünnungsmittel und gegebenenfalls Bindemittel ab. Die Dämpfe können durch den zweiten Kanal 30 der Schablone 22 oder durch die Schablone 22 hindurch entweichen, falls diese porös ausgestaltet ist. Im weiteren Verlauf, nachdem sämtliche Binde- und Lösemittel aus der Dichtmasse gegeben wurden, liegt die Dichtmasse beispielsweise als trockene Rohsubstanz des Glaslotes vor, das heißt als poröser Körper mit der Form des auszubildenden Dichtungsabschnitts. Ein derartiger poröser Grünkörper stellt bei einer Kompression des Brennstoffzellenstapels (das heißt bei einem Zusammenpressen der Dichtflächen 10a, 16a) einen mechanischen Widerstand dar. Der Porenkörper wird daher bei einer Erhöhung der Kompression gegebenenfalls kontrolliert kollabieren und dabei in seiner Höhe abnehmen (Reduzierung des Porenvolumens). Im weiteren Verlauf beginnen Bestandteile des Dichtungsabschnitts beziehungsweise des Dichtelements zu sintern und entsprechend der Zusammensetzung des Glaslots aufzuschmelzen. Dabei erfolgt ein Übergang von einer festen zu einer hochviskosen flüssigen Konsistenz des Dichtelements. Bei einer weiteren Temperaturerhöhung schmilzt das Glaslot komplett auf und benetzt die gegeneinander abzudichtenden Flächen der aufeinanderfolgenden Wiederholeinheiten 10, 16. Durch das hochgradig nicht-Newtonsche Fließverhalten einer derartigen Glasschmelze sowie die Kapillarwirkung innerhalb der Dichtspalte wird verhindert, dass in einem definierten Zeitraum das Glaslot vollständig aus dem Dichtspalt herausgedrückt wird, auch bei einer weiteren Kompression der Dichtflächen. Das weitere Komprimieren und damit die Reduzierung der Höhe des Dichtelements ist vorteilhaft, um die Schrumpfung des Dichtungsabschnitts auszugleichen, die durch die Abgabe von Binde- und Lösemitteln sowie eingeschlossener Luft- und Gasblasen entstehen können.

Die weitere Kompression des Brennstoffzellenstapels im Verlauf des Fügevorgangs kann beispielsweise entsprechend den beiden folgenden Varianten erfolgen.

- 5 Im Falle einer brennbaren Schablone 22 verbrennt diese bei einer weiteren Temperaturerhöhung vorzugsweise ohne Rückstände. Durch die Kompression des Brennstoffzellenstapels, verursacht durch eine temporäre oder permanente Verspannung des Brennstoffzellenstapels während des Brennprozesses, kollabiert die Schablone 22 während des Verbrennens. Das Berühren der aufeinanderfolgenden Wiederholeinheiten wird durch eine Begrenzung und/oder Dosierung der Kompressionskraft  $F$  verhindert. Eine Berührung hätte zur Folge, dass die Dichtmasse 40 unter Umständen vollständig aus dem Dichtspalt herausgepresst wäre und die Wiederholeinheiten 10, 16 zudem einen elektrischen Kurzschluss erfahren. Durch die Begrenzung der Kraft  $F$  verbleibt die Dichtmasse 40  
10 im Wesentlichen in ihrer ursprünglichen Form, in der Ebene, die durch den Dichtspalt vorgegeben war, so dass eine Flächendichtung (Dichtungsabschnitt 42) um die abzudichtenden Ausnehmungen 12 und 18 gebildet wird. Die Höhe des Dichtungsabschnitts 42 beziehungsweise des Dichtelements ist (etwas) geringer als die Höhe des ursprünglichen Luftspalts (der Negativform), da die  
15 Dichtmasse 40, wie erwähnt, während des Schmelzprozesses Bindemittel und Lösemittel abgibt und somit schrumpft. Es ist daher vorteilhaft, die Verspannung des Brennstoffzellenstapels während des Brennens nachzuführen.

- Bei einer weiteren Variante wird die Schablone 22 nicht (rückstandslos) verbrannt, sondern es wird durch die Verspannung des Brennstoffzellenstapels ein  
25 gezieltes Kollabieren der Schablone 22, unterstützt durch den Verlust (thermischen Abbau) mindestens einer strukturbildenden Komponente hervorgerufen. In diesem Fall kann die elektrisch isolierende Wirkung der Schablone 22 beziehungsweise der entsprechenden Abbauprodukte in vorteilhafter Weise genutzt  
30 werden, um Kurzschlüsse zwischen aufeinanderfolgenden Wiederholeinheiten 10, 16 sicher zu vermeiden.

Figur 6 zeigt eine der Darstellung von Figur 5 entsprechende Draufsicht eines fertiggestellten Dichtungsabschnitts. Figur 6 ist zu entnehmen, dass sich der erfindungsgemäß hergestellte Dichtungsabschnitt 42 kreisringförmig um die erste Ausnehmung 12 in der ersten Wiederholeinheit 10 herum erstreckt, so dass durch den Dichtungsabschnitt 42 ein die ersten Ausnehmungen 12 und 18 verbindender Kanal gebildet wird. In der zweiten Ausnehmung 14 vorhandene Dichtungsmasse wurde gemäß der Darstellung von Figur 6 vor dem Aushärten der Dichtungsmasse 40 mittels eines weiteren (nicht dargestellten) Dorns entfernt. Es sind jedoch ebenfalls Ausführungsformen denkbar, bei denen Dichtungsmasse 40 in den zweiten Ausnehmungen verbleibt, um die Stabilität des Gesamtaufbaus zu erhöhen.

Obwohl die vorstehend erläuterten Ausführungsformen der Erfindung als besonders vorteilhaft erachtet werden, ist eine Vielzahl von Modifikationen möglich. Beispielsweise sind Ausführungsformen denkbar, bei denen keine zweiten Ausnehmungen vorgesehen sind, so dass die Dichtungsmasse direkt in die ersten Ausnehmungen eingefüllt wird. Auf den Dorn 36 kann gegebenenfalls verzichtet werden. Es ist ebenfalls denkbar, den Dorn 36 erst nach dem Einbringen der Dichtungsmasse einzuführen, um die Dichtungsmasse aus den ersten Ausnehmungen zu entfernen. Alternativ kann die Dichtungsmasse in den ersten Ausnehmungen verbleiben.

Weiterhin kann vorgesehen sein, dass die Dichtungsmasse 40 durch eine poröse Ausgestaltung der Schablone 22 filtriert wird. In diesem Fall wird der zweite Kanal 30 der Schablone 22 vorzugsweise weggelassen. Durch den inneren Druck wird die Dichtungsmasse 40 vom Dichtspalt durch die Schablone 22 gedrückt. Dabei werden feste Partikel (Glaslot) zurückgehalten, während Verdünnungsmittel der Dichtungsmasse 40 (Wasser) als Filtrat nach außen gedrückt wird und abläuft. Dadurch kann trotz einer stark verdünnten und damit besser

- 16 -

fließfähigen Dichtungsmasse 40 ein sehr kompakter Rohling für den auszubildenden Dichtungsabschnitt gebildet werden (Filterkuchen).

5 Das schnelle und prozesssichere Abfließen des Verdünnungsmittels durch die poröse Struktur der Schablone kann durch eine Oberflächenmodifikation der Faser- bzw. Porenstruktur verbessert werden, indem die Benetzung der Faser-/Porenstruktur durch das Lösungsmittel erhöht wird. Im Falle von Wasser kann zum Beispiel eine hydrophile Oberflächenschicht oder des Imprägnieren mit einer hydrophilen Komponente den Abtransport des Wassers nach außen  
10 verbessern.

Die in der vorstehenden Beschreibung, in den Zeichnungen sowie in den Ansprüchen offenbarten Merkmale der Erfindung können sowohl einzeln als auch in beliebiger Kombination für die Verwirklichung der Erfindung wesentlich sein.

15



**Bezugszeichenliste**

	10	erste Wiederholeinheit
	10a	erste Dichtfläche
5	12	erste Ausnehmung
	14	zweite Ausnehmung
	16	zweite Wiederholeinheit
	16a	zweite Dichtfläche
	18	erste Ausnehmung
10	20	zweite Ausnehmung
	22	Schablone
	24	erste Ausnehmung
	26	zweite Ausnehmung
	28	erster Kanal
15	30	zweiter Kanal
	32	Randbereich
	34	Endplatte
	36	Dorn
	38	Zuführeinrichtung
20	40	Dichtungsmaterial
	42	Dichtungsabschnitt

## ANSPRÜCHE

5

1. Verfahren zur Herstellung einer Brennstoffzelle beziehungsweise eines  
10 Brennstoffzellenstapels, mit den folgenden Schritten:
- a) Vorsehen einer ersten Wiederholeinheit (10) mit einer ersten Dichtfläche (10a) und zumindest einer zweiten Wiederholeinheit (16) mit einer zweiten Dichtfläche (16a); und
  - b) Ausbilden von zumindest einem Dichtungsabschnitt (42) zwischen der  
15 ersten Dichtfläche (10a) und der zweiten Dichtfläche (16a);  
**dadurch gekennzeichnet**, dass der Schritt b) umfasst:
  - b1) Anordnen einer Schablone (22) zwischen der ersten Dichtfläche (10a) und der zweiten Dichtfläche (16a), wobei die Schablone (22) zumindest einen Randbereich (32) aufweist, der benachbart zu dem auszubilden-  
20 den Dichtungsabschnitt (42) angeordnet wird; und
  - b2) Einbringen einer Dichtungsmasse (40) in einen Bereich, der durch die erste Dichtfläche (10a), die zweite Dichtfläche (16a) und den Randbereich (32) der Schablone (22) begrenzt wird.
- 25 2. Verfahren nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, dass zum Aufstapeln eines Brennstoffzellenstapels eine Vielzahl von Wiederholeinheiten (10, 16) übereinander angeordnet wird, wobei zwischen jeweils zwei benachbarten Wiederholeinheiten (10, 16) jeweils zumindest eine Schablone (22) vorgesehen wird.

30

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Schablone (22) zumindest teilweise aus einem organischen Fasermaterial, einem Kohlefasermaterial oder einem entsprechenden Verbundmaterial gebildet ist.

5

4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Schablone (22) während und/oder nach der Ausbildung des zumindest einen Dichtungsabschnitts (42) ganz oder teilweise entfernt und/oder ganz oder teilweise in ihren Materialeigenschaften verändert wird.

10

5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Dichtmasse dispergierte Bestandteile für ein Glaslot enthält.

15

6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Dichtmasse (40) zur Ausbildung des zumindest einen Dichtungsabschnitts (42) zumindest teilweise einem Aushärte- und/oder Gelierprozess unterzogen wird. Schablone

20

7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass der zumindest eine Dichtungsabschnitt (42) benachbart zu einer ersten Ausnehmung (12) in der ersten Wiederholeinheit (10) ausgebildet wird.

25

8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass der zumindest eine Dichtungsabschnitt (42) benachbart zu einer ersten Ausnehmung (18) in der zweiten Wiederholeinheit (16) ausgebildet wird.

30

9. Verfahren nach Anspruch 7 oder 8, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Schablone (22) eine erste Ausnehmung (24) aufweist, deren Abmessungen

- 20 -

größer als die Abmessungen der ersten Ausnehmung 12 in der ersten Wiederholeinheit 10 und/oder größer als die Abmessungen der ersten Ausnehmung in der zweiten Wiederholeinheit (16) sind.

- 5 10. Verfahren nach Anspruch 9, **dadurch gekennzeichnet**, dass das Einbringen der Dichtungsmasse (40) gemäß dem Schritt 2b) zumindest teilweise über die erste Ausnehmung (12) in der ersten Wiederholeinheit (10) und/oder über die erste Ausnehmung (18) in der zweiten Wiederholeinheit (16) und/oder über die erste Ausnehmung (24) in der Schablone (22) erfolgt.

10

11. Verfahren nach Anspruch 10, **dadurch gekennzeichnet**, dass sich beim Einbringen der Dichtungsmasse gemäß dem Schritt 2b) ein Dorn (36) zumindest teilweise durch die erste Ausnehmung (12) in der ersten Wiederholeinheit (10) und/oder die erste Ausnehmung (18) in der zweiten Wiederholeinheit (16) und/oder die erste Ausnehmung (24) in der Schablone (22) erstreckt.

15

12. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die erste Wiederholeinheit (10) eine zweite Ausnehmung (14) und/oder die zweite Wiederholeinheit eine zweite Ausnehmung (20) und/oder die Schablone (22) eine zweite Ausnehmung (26) aufweist.

20

13. Verfahren nach Anspruch 12, **dadurch gekennzeichnet**, dass die erste Ausnehmung (24) der Schablone (22) über einen ersten Kanal (28) mit der zweiten Ausnehmung (26) der Schablone (22) verbunden ist.

25

14. Verfahren nach Anspruch 12 oder 13, **dadurch gekennzeichnet**, dass das Einbringen der Dichtungsmasse gemäß dem Schritt 2b) zumindest teilweise über die zweite Ausnehmung (14) in der ersten Wiederholeinheit (10) und/oder über die zweite Ausnehmung (20) in der zweiten Wiederholeinheit (16) und/oder über die zweite Ausnehmung (26) in der Schablone (22) erfolgt.

30

- 21 -

15. Verfahren nach Anspruch 14, **dadurch gekennzeichnet**, dass nach der Durchführung des Schrittes 2b) in der zweiten Ausnehmung (14) in der ersten Wiederholeinheit (10) und/oder in der zweiten Ausnehmung (20) in der zweiten Wiederholeinheit (16) und/oder in der zweiten Ausnehmung (26) in der Schablone (22) vorhandene Dichtmasse (40) zumindest teilweise wieder entfernt wird, insbesondere mit Hilfe eines zweiten Dorns.

16. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die erste Wiederholeinheit (10) und die zweite Wiederholeinheit (16) während der Durchführung des Schritts b) zumindest zeitweise komprimiert werden, vorzugsweise durch zumindest eine geregelte Kraftkomponente.

17. Brennstoffzellenstapel, hergestellt mit dem Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche.

18. Brennstoffzellenstapel nach Anspruch 17, **dadurch gekennzeichnet**, dass zumindest zwei in Stapelrichtung des Brennstoffzellenstapels zumindest im Wesentlichen miteinander ausgerichtete Dichtungsabschnitte durch Dichtungsmasse verbunden sind.



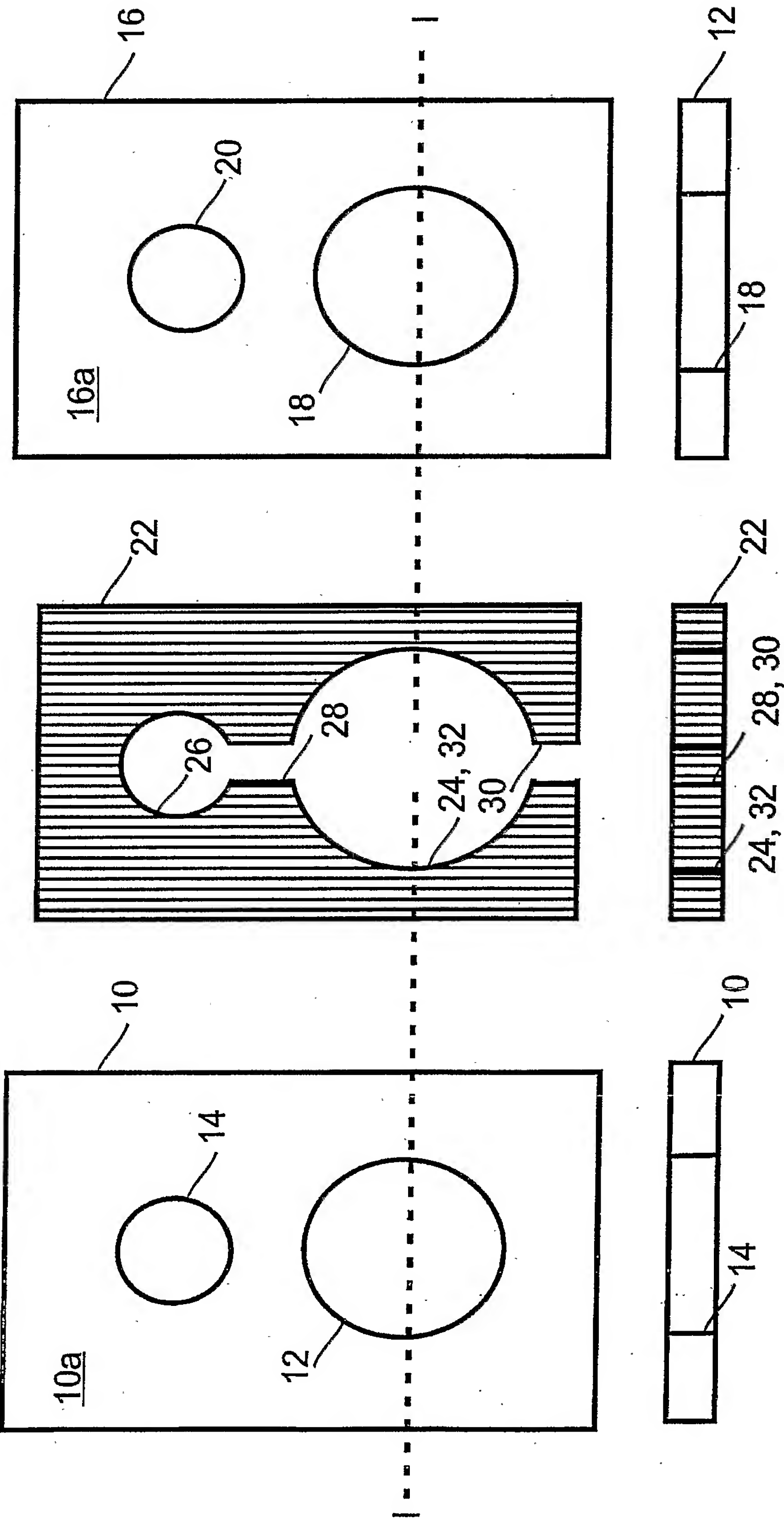


FIG. 1

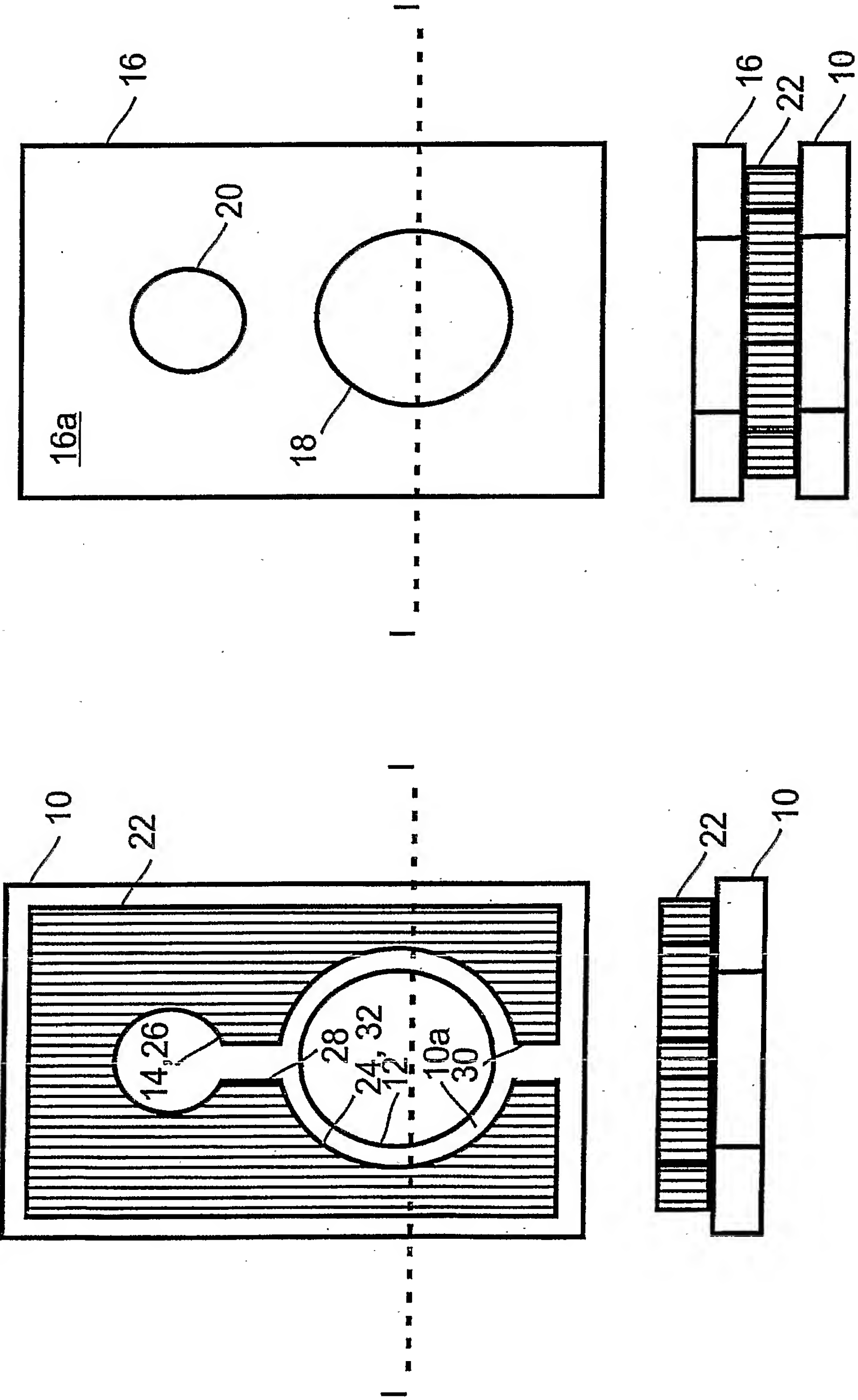


FIG. 2

FIG. 3

3/5

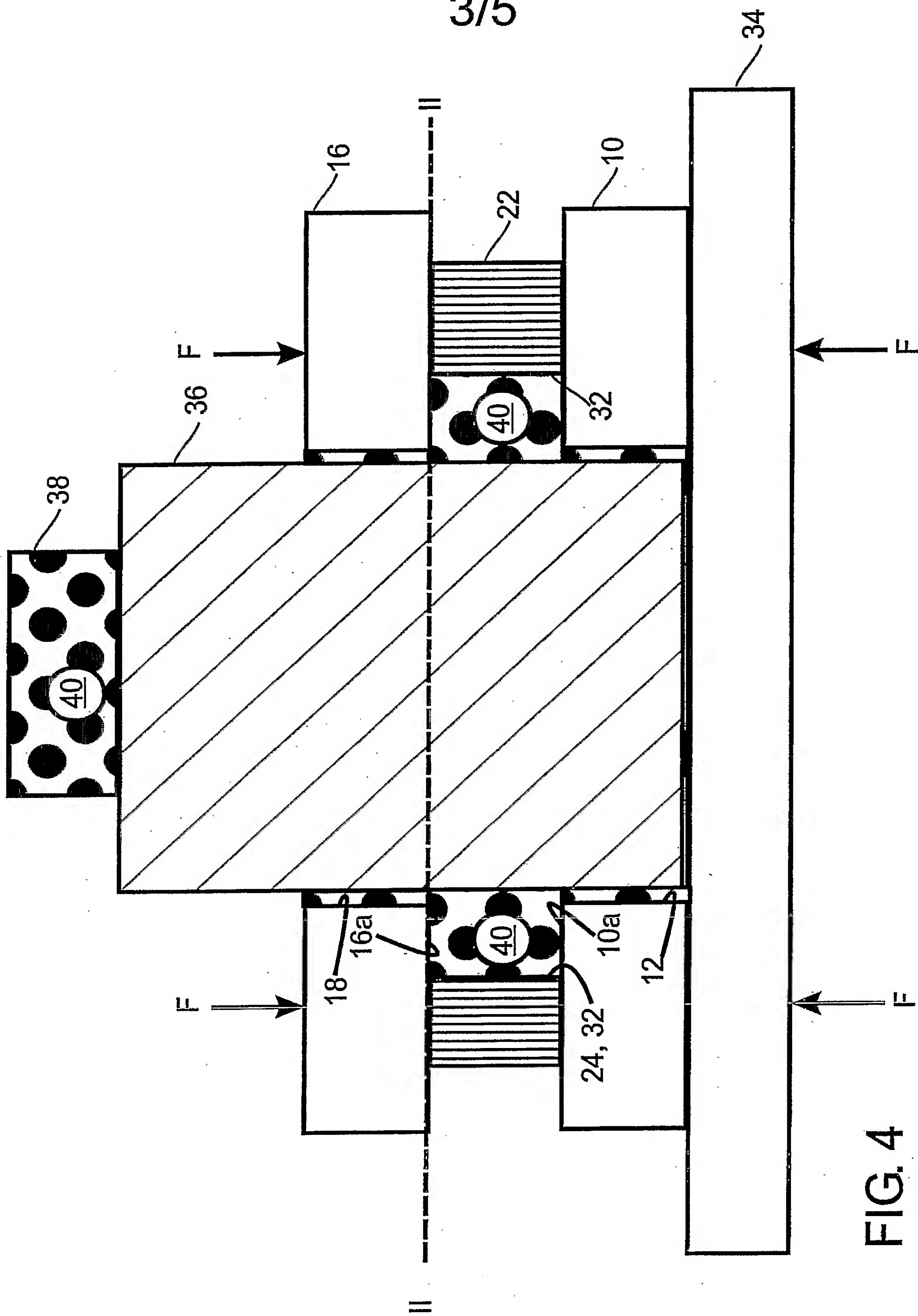


FIG. 4

4/5

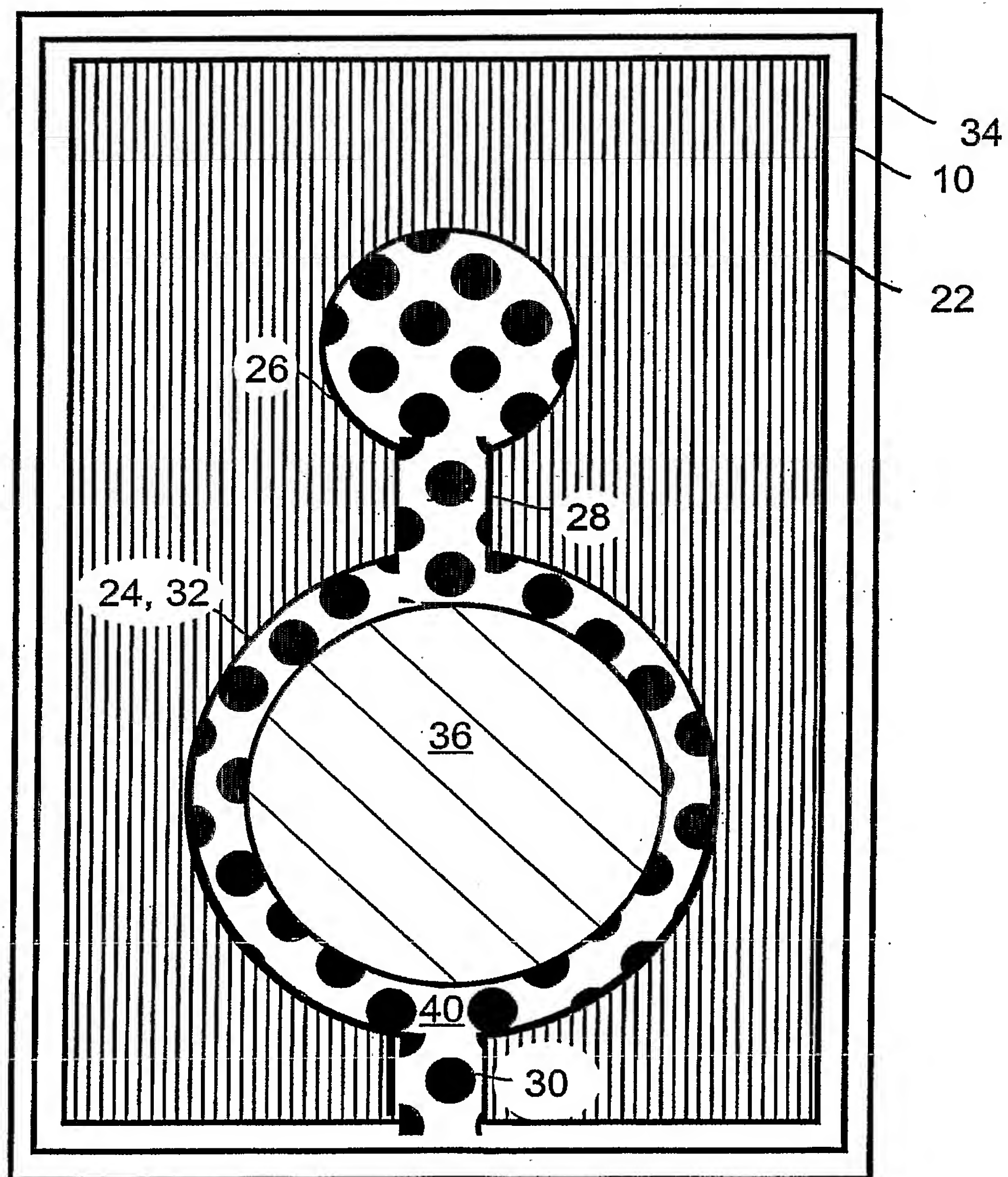


FIG. 5

5/5

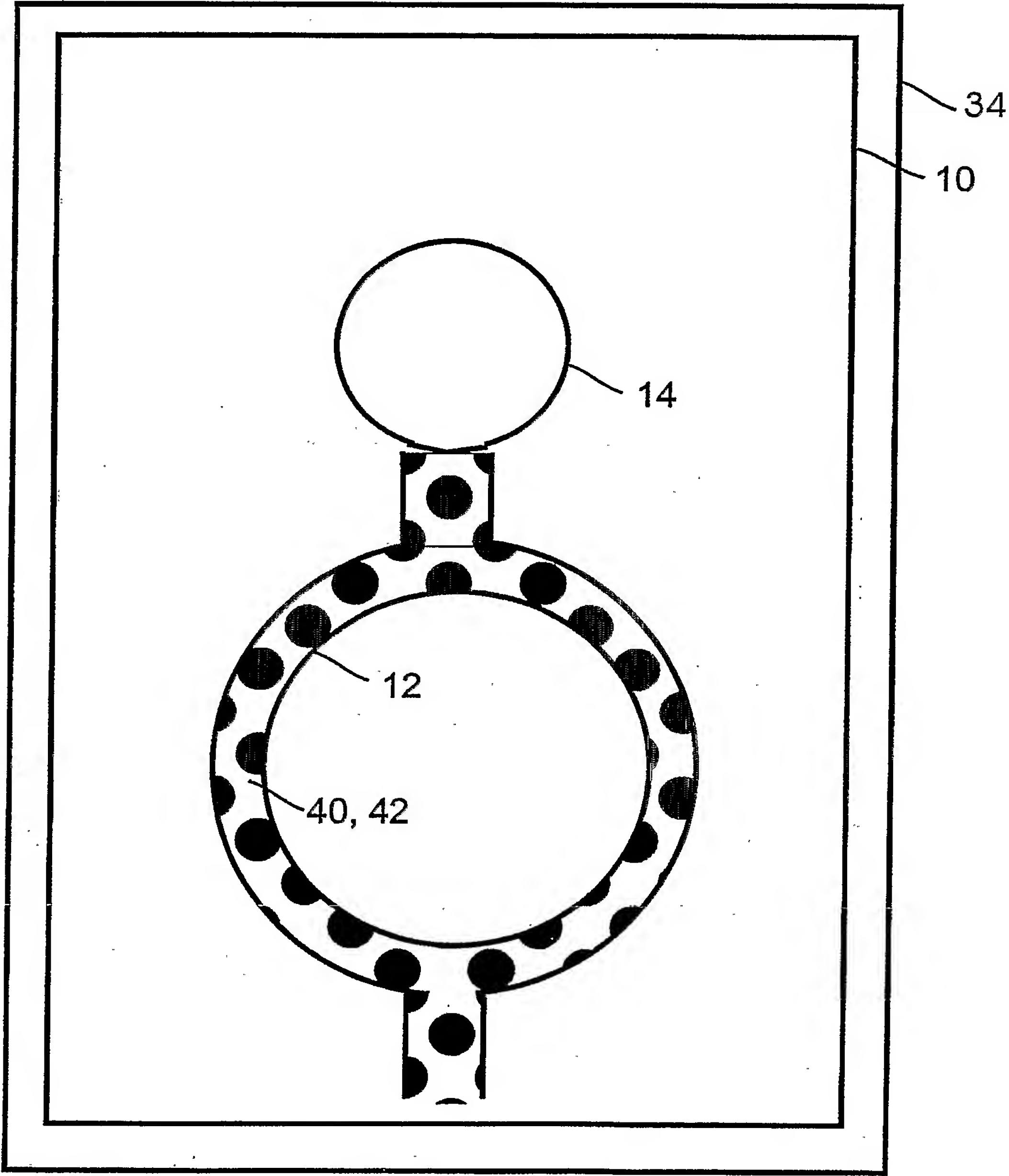


FIG. 6